

525,822

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際

(19)世界知的所有権機関
国際事務局(43)国際公開日
2004年3月11日 (11.03.2004)

PCT

(10)国際公開番号
WO 2004/021746 A1

(51)国際特許分類7: H05B 33/22, 33/14

(21)国際出願番号: PCT/JP2003/010299

(22)国際出願日: 2003年8月13日 (13.08.2003)

(25)国際出願の言語: 日本語

(26)国際公開の言語: 日本語

(30)優先権データ: 特願2002-255661 2002年8月30日 (30.08.2002) JP

(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): パイオニア株式会社 (PIONEER CORPORATION) [JP/JP]; 〒153-8654 東京都目黒区目黒1丁目4番1号 Tokyo (JP).

(72)発明者; および

(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 永山 健一 (NAGAYAMA,Kenichi) [JP/JP]; 〒350-2288 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パイオニア株式会社 総合研究所内 Saitama (JP). 宮口 敏 (MIYAGUCHI,Satoshi) [JP/JP]; 〒350-2288 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パイオニア株式会社 総合研究所内 Saitama (JP). 白鳥 昌宏 (SHIRATORI,Masahiro) [JP/JP]; 〒350-2288 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パイオニア株式会社 総合研究所内 Saitama (JP).

(74)代理人: 藤村 元彦 (FUJIMURA,Motohiko); 〒104-0045 東京都中央区築地4丁目1番17号 銀座大野ビル 藤村国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81)指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84)指定国(広域): ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

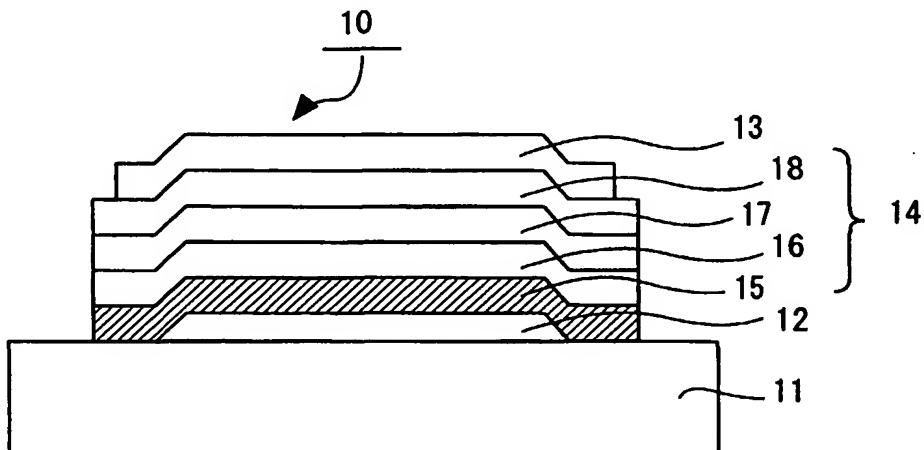
添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

(54) Title: ORGANIC EL ELEMENT

(54)発明の名称: 有機EL素子



(57) Abstract: An organic EL element, wherein a leak prevention layer having a resistance increased according to the rise of temperature is installed in an organic EL layer held between an anode and a cathode and emitting light, whereby the anode and cathode can be prevented from being short-circuited due to dielectric breakdown.

(57)要約: 有機EL素子において、絶縁破壊により陽極及び陰極がショートしてしまうのを防止するため、陽極と陰極との間に挟持され光を発する有機EL層中に、温度上昇に伴い高抵抗化するリーク防止層を備えた。

WO 2004/021746 A1

明細書

有機EL素子

5 技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

背景技術

光発光型の薄膜素子の一つとして、有機機能層を陽極と陰極で挟持した構造を有する有機EL(Electroluminescence)素子が知られている。

10 図1は、従来の有機EL素子100の一例を示す断面図である。有機EL素子100は、基板110と、基板110上に形成された陽極120と、陽極120上に積層された複数の層から構成される有機機能層140と、有機機能層140上に形成された陰極130とを備えている。

15 有機機能層140は、少なくとも発光層を有する有機物層である。図1において、有機機能層140は、正孔注入層141、正孔輸送層142、発光層143、及び、電子注入層144を有しており、各層は陽極120上に順に積層されている。

陽極120と陰極130との間に電圧を印加すると、陽極120又は正孔注入層141から正孔輸送層142を介してホールが、また同時に、陰極130又は電子注入層144から電子が、それぞれ発光層143に注入される。発光層143内で、ホールと電子は再結合し、励起子を形成する。励起子は、非常に短時間の間に、下位のエネルギー順位に落ちるとともに、その一部は下位のエネルギー順位と励起状態の差分エネルギーを光として放出する。この発光層143内で放出された光は、基板110側または陰極130

側に出射する。これにより、有機EL素子100は、発光素子として機能する。

しかしながら、従来の有機EL素子の一部にピンホールや部分的に膜厚が薄い等の欠陥箇所があった場合、他の部分に比べ欠陥箇所の抵抗が低くなり、欠陥箇所に電流(電子又はホール)が集中する。この電流の集中によるジュール熱の増大及び電界

5 強度の増加は、欠陥か所を絶縁破壊し、最終的に陽極と陰極間がショートしてしまうという問題がある。

図2A及び2Bは、この欠陥による絶縁破壊を説明する図である。この有機EL素子200は、基板210の上に陽極220を形成し、有機機能層230、有機機能層240を成膜した後、陰極250を形成することにより作成されている。図2Aの有機EL素子200では、
10 成膜過程において有機機能層240内に欠陥であるピンホール245が形成されており、ピンホール245内は、陰極250で埋められている。

このような欠陥を有する有機EL素子200に電圧を印加すると、ピンホール245の直下に位置する有機機能層230中の一部分235に電流が集中し、大きな電界が発生する。この状態が継続すると、図2Bに示すように、有機機能層220中の一部分235に絶縁破壊が生じ、陽極220及び陰極250がショートしてしまい、有機EL素子200が発光素子として機能しなくなる。ディスプレーパネル等に、このような欠陥を有する有機EL素子を用いると、ディスプレーパネルの表示品質が著しく損なわれてしまい、製品としての価値が低下してしまう。

上記欠陥は、特に有機機能層を蒸着法で成膜した場合に発生しやすい。一般に、
20 蒸着法は、ステップカバレッジ(段差の被膜性)が悪いので、基板の傷や、基板上の異物により容易に膜の欠陥が生じやすい。

本発明が解決しようとする課題としては、上述したように、絶縁破壊により陽極及び陰

極がショートしてしまうという問題が一例として挙げられる。

発明の開示

本発明の1特徴による有機EL素子は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に挟持され、光を発する有機EL層とを備え温度上昇に伴い高抵抗化するリーク防止

5 層を少なくとも有する有機EL素子である。

図面の簡単な説明

図1は、有機EL素子の一例を示す図である。

図2A及び図2Bは、有機EL素子の問題点を示す図である。

図3は、本発明による有機EL素子の実施例を示す図である。

10 図4A及び4Bは、リーク防止層の作用を説明するための模式図である。

図5A及び5Bは、リーク防止層の抵抗値の温度変化を表す図である

図6A及び6Bは、蒸着法で形成されたリーク防止層のステップカバレッジを改善するための後処理を示す図である。

図7は、本発明による有機EL素子の実施例の一変形例を示す図である。

15 図8は、本発明による有機EL素子の実施例の他の変形例を示す図である。

図9は、ポリアニリン膜における加熱温度と比抵抗の関係を示すグラフである。

図10は、有機EL素子の逆電圧特性を示す図である。

発明を実施するための形態

以下、本発明による有機EL素子の実施例について詳細に説明する。

20 本発明による有機EL素子は、陽極と陰極との間に挟持され、光を発する有機EL層を備えている。この有機EL層は、温度上昇に伴い高抵抗化するリーク防止層を少なくとも有している。以下、添付図面を参照しながら、本実施例の有機EL素子について、

図面を参照しながら詳細に説明する。

図3は、本発明の実施例としての有機EL素子10を示す断面図である。有機EL素子10は、基板11と、基板11上に形成された陽極12と、陽極12上に積層された複数の層から構成される有機機能層14と、有機機能層14上に形成された陰極13とを備えて
5 いる。

有機機能層14は、陽極13側から順に積層された正孔注入層15、正孔輸送層16、発光層17、及び、電子注入層18を有している。正孔注入層15は、電圧の印加により、正孔輸送層16を介してホールを発光層17に注入する。電子注入層18は、電圧の印加により、電子を発光層17に注入する。発光層17内で、ホールと電子は再結合し、励
10 起子を形成する。励起子は非常に短時間の間に、下位のエネルギー順位に落ちるとともに、その一部は下位のエネルギー順位と励起状態との差分エネルギーを光として放出する。この発光層17内で放出された光は、基板11側または陰極13側より出射する。これにより、有機EL素子10は、発光素子として機能する。

正孔注入層15は、通常使用温度領域では、正孔輸送層16を介してホールを発光
15 層17に注入する正孔注入層として機能する。一方、正孔注入層15は、通常使用温度より高い温度領域では、家電流を抑制するリーク防止層として機能する。正孔輸送層15は、少なくとも製品の最高使用温度(最高動作温度又は最高保存温度)を超える高温域で比抵抗が上昇し、高抵抗化する材料から構成されている。従って、正孔注入層15は、欠陥に起因する電流集中によりジュール熱の発生により高抵抗化する。これに
20 より、電流が抑制され、絶縁破壊等の素子の損傷を防ぐ。

図4A及び4Bは、リーク防止層の作用を説明するための模式図である。ここでは、説明の簡略化のため、有機機能層は、リーク防止層とその他の層の2層のみから構成さ

れているとして説明する。

図4Aにおいて、有機EL素子20は、基板21の上に陽極22を形成し、リーク防止層23、有機機能層24を成膜した後、陰極25を形成することにより作成されている。ここで、リーク防止層23は、少なくとも製品の最高使用温度(最高動作温度又は最高保存温度)を超える高温域で比抵抗が上昇し、高抵抗化する材料から構成されている。また、このEL素子20では、成膜過程において有機機能層24内に形成された欠陥であるピンホール24aが存在しており、ピンホール24a内は、陰極25で埋められている。

このような欠陥を有する有機EL素子20に電圧を印加すると、ピンホール24aの直下に位置するリーク防止層23中的一部分23aに電流が集中し、大きな電界が発生する。
この電流集中は大きなジュール熱を発生させ、リーク防止層23の温度を最高使用温度以上に上昇させる。この温度上昇は、図4Bに示すように、リーク防止層23の比抵抗を上昇させ、リーク防止層23を高抵抗化する。よって、リーク防止層23を流れる電流は減少し、リーク防止層の発熱及び電界は緩和される(熱修復)。このように、有機機能層の一層に、リーク防止層として機能する層を設けることにより、有機機能層中のある一ヵ所への電流の集中を防ぎ、有機EL素子20の破壊が防止される。

図3では、正孔注入層15をリーク防止層として構成したが、リーク防止層は、有機機能層の任意の位置に設けることが可能である。先述の通り、リーク防止層は、電流集中を防ぐだけでなく、通常動作時にはキャリア(電子又はホール)の注入、輸送等、有機EL素子の一部として機能する。従って、有機EL素子全体の素子効率を高めるためには、配置された場所に応じてイオン化ポテンシャル、キャリア移動度等が適切に設定されている必要がある。例えば、発光層よりも陰極に近い側に設けられたリーク防止層は、高い電子輸送性を有している必要があり、発光層よりも陰極に近い側に設けら

れたリーク防止層は、高い正孔輸送性を有している必要がある。

リーク防止層以外の層を低分子材料で作成し、且つ、リーク防止層をスピンドルコート法や印刷法等の湿式成膜法、若しくは、スパッタ法等基板に対するダメージが大きい成膜法で作成する場合には、一番最初にリーク防止層を成膜するのが好ましい。一般に、

5 低分子の有機材料は、耐溶剤性または耐熱性が低い。従って、低分子の有機材料を素材として構成されるリーク防止層以外の有機機能層を成膜し、その後、上記方法等でリーク防止層を成膜すると、リーク層以外の有機機能層にダメージを与えてしまう可能性がある。

より具体的には、基板上に陽極を配置した有機EL素子の場合には、正孔輸送性の

10 リーク防止層を陽極の直上に成膜配置するのが好ましい。また、基板上に陰極を配置した有機EL素子の場合には、電子輸送性のリーク防止層を陰極の真上に成膜配置するのが好ましい。

リーク防止層は、120°C以上の温度で高抵抗化することが好ましい。通常有機ELの使用温度範囲は100°C程度までであるため、これより高い温度で高抵抗化することに

15 より、電流集中による素子の破損を抑制することが可能である。

さらに、リーク防止層は、200°C以上の温度で高抵抗化することがさらに好ましい。有機EL素子の使用温度範囲が100度程度であっても、有機EL素子中を流れる電流により発生するジュール熱、駆動回路等の有機EL素子以外の箇所からの発熱により、

使用中の有機EL素子は、120～200°Cとなる。よって、正常動作時の有機EL素子の

20 駆動を妨げないためにも、200°C以下で高抵抗化しないほうがよい。

また、リーク防止層は、400°C以下の温度で高抵抗化することが好ましく、300°C以下の温度で高抵抗化することがさらに好ましい。従来の有機EL素子で陽極－陰極間

がショートした部分を観察すると、陰極に用いているAlが溶解した様子が観察されるため、欠陥部分は局所的、一時的にはAlの融点(約660°C)以上にまで温度が上昇しているものと思われる。一般に、500°Cを超えるような高温域では、リーク防止層自体が消耗し、激しく重量減少してしまうため、ショートを防止する能力が失われてしまう。よって、リーク防止層の高抵抗化がショート防止に役に立たなくなるような高温下で生じることは、好ましくない。一般には、300~400°C程度の温度域で生じると効果的である。

以上をまとめると、リーク防止層は、120~400°Cの温度で高抵抗化することが好ましく、また200~300°Cの温度で高抵抗化することがさらに好ましい。

10 図5A及び5Bは、リーク防止層の抵抗値の温度変化を表す図である。ここで、リーク防止層は、高抵抗化温度近傍で、抵抗値の変化率が急峻であることが好ましい。図5Aのように高抵抗化温度近傍(高抵抗化領域)での変化がなだらかであると、欠陥部における電流の緩和がゆっくりと進んでしまい、ジュール熱による影響が欠陥部周辺に広く及んでしまう。欠陥部において、リーク防止層は、ヒューズのように働くのが理想的であり、リーク防止層の高抵抗化は、図5Bのように、高抵抗化温度近傍で急峻に抵抗値が変化することが望ましい。

ここで、リーク防止層が高抵抗化するとは、リーク防止層の抵抗値が、電流集中によるジュール熱により、電極間のショートを生じさせない程度まで、大幅に上昇することを意味する。欠陥部が電流集中により高温になった場合、電流集中を緩和するために20は、リーク防止層単層の抵抗は、少なくとも、正常な部分の有機機能全体の抵抗と同等以上になる必要がある。つまり、正常時における陽極・陰極間抵抗と同等以上になる必要がある。つまり、

(高抵抗化時のリーク防止層の抵抗値) \geq (通常温度での有機機能層の抵抗値) が満たされていなければならない。

リーク防止層が、通常温度時から高抵抗化時に至る過程でどの程度抵抗値が変化すればよいかは、素子構造に依存するため一概には言えないが、一般には、抵抗値
5 が一桁以上上昇する、または、高抵抗化時に絶縁体化する(比抵抗が $10^{11} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上となる)ことが好ましい。

リーク防止層は、他の有機機能層を構成する層に意図せず形成された欠陥部に起因する有機EL素子の破壊を防ぐものである。従って、リーク防止層は、リーク防止層自身に欠陥が存在しないほうがよい。しかし、基板上の傷や異物等による凹凸部分が
10 あると、有機機能層を構成する各層で共通の欠陥となりやすいため、リーク防止層自身にも欠陥が生じる可能性がある。リーク防止層自身に欠陥が多数生じている場合には、ジュール熱により高抵抗化してもショートを防ぐことができなくなってしまう。

これらを考慮し、リーク防止層は、他の有機機能層に比べ同等以上にステップカバレッジが良好で且つピンホールが少ないことが好ましい。ステップカバレッジが良好で、
15 ピンホールが少ない膜を形成するためには、リーク防止層をスピンドル法や印刷法などの湿式成膜法、CVD法等の回り込みのより気相成膜法で成膜するのが好ましい。

また、蒸着法等、方向性が強く、ステップカバレッジの悪い成膜法で作成した場合は、後処理により、ステップカバレッジの良好な膜にすることが好ましい。

20 ここで、スピンドル法は、流動性の材料を回転させた積層面に滴下し遠心力により積層面に均一に塗布する方法を指す。また、印刷法とは、フレキソ印刷等の方法を言う。

また、CVD(化学蒸着)法は、反応系分子の気体、あるいはこれと不活性の担体との混合気体を加熱した基板上に流し、加水分解、自己分解、光分解、酸化還元、置換などの反応による生成物を基板上に堆積させる方法をいう。

また、蒸着法は、金属又は非金属の小片を高真空中で加熱蒸発させて、ガラス、水
5 晶板、へき開した結晶等の下地表面に薄膜として接着させる方法をいう。

図6A及び6Bは、蒸着法等で形成されたリーク防止層のステップカバレッジを改善するための後処理方法の一例を示す図である。図6Aに示すように、蒸着法等のステップカバレッジの悪い成膜法を用いると、でっぱりの上面や凹みの底面には、リーク防止層が成膜されるが、でっぱり及び凹みの側面には、リーク防止層が成膜されにくい。
10 そのため、リーク防止層の下面の層が露出してしまい、下面がリーク防止層で完全に覆われにくい。

この不備を補うために、後処理として、をリーク層構成材料のガラス転移点又は融点付近の温度で加熱する。この加熱により、リーク防止層が溶融移動し、露出した下面の層を覆う。これにより、リーク防止層の表面をなめらかにし、ピンホール等を除去し、
15 ステップカバレッジを改善することが可能となる。

ここで、リーク防止層が厚い場合には、ピンホールが少なくなり、かつ、ステップカバレッジが良好になるので欠陥の少ない膜とすることが可能である。また、リーク防止層の膜厚方向の抵抗は、リーク防止層の比抵抗と膜厚の積に比例するため、リーク防止層が厚い場合には、欠陥部分で高温による高抵抗化の効果がより大きくなり好ましい。
20 い。

ただし、リーク防止層が厚くなり膜厚方向の抵抗が大きくなると、正常な部分で素子の駆動電圧が上昇してしまう。また、リーク防止層を隣接する画素で共通にベタ状に

形成する場合、リーク防止層の膜厚が厚すぎると、リーク防止層の基板に水平な方向の抵抗(シート抵抗)が小さくなり、隣接する画素が電気的に短縮してしまう可能性がある。リーク防止層のシート抵抗は、(比抵抗／膜厚)に比例する。

また、リーク防止層が薄い場合には、リーク防止層の膜厚方向の抵抗が小さくなり、

5 正常な部分で素子の駆動電圧が低くなる。ただし、リーク防止層が薄い場合には、ピンホールが多くなり、かつ、ステップカバレッジが悪化するので欠陥の多い膜となってしまう。さらに、リーク防止層の膜厚方向の抵抗が小さくなるため、欠陥部分で高温による高抵抗化の効果が小さくなる可能性がある。

以上を考慮すると、リーク防止層の厚さの下限は、高温で高抵抗化した後のリーク防

10 止層の膜厚方向の抵抗が、正常部(リーク防止層以外)の有機機能層の膜厚方向の抵抗より大きくなるように設定されていることが好ましい。また、膜に欠陥が生じない程度の厚さであることが好ましい。この条件を満たす範囲として、リーク防止層の膜厚は、例えば100Å程度であることが好ましい。

また、リーク防止層を隣接する画素で共通にベタ状に形成する場合、隣接する画素

15 が短絡しクロストークを生じないことが好ましい。この条件を満たす範囲としては、隣接する画素間のギャップの大きさにも依存するが、具体的には、リーク防止層のシート抵抗は、 $1(M\Omega \cdot cm)$ 以上、さらに好ましくは $10(M\Omega \cdot cm)$ 以上である。

上記のような条件を満たすリーク防止層用の材料としては、酸をドープすることにより導電性を高めた高分子材料を用いることが可能である。具体的には、ポリアニリン、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリフラン等の導電性高分子を用いることができる。これらの高分子には、導電性を高めるために酸がドープされている。これらの高分子を、高温にすると、ドープされていた酸が脱ドープし、抵抗値が増大するため導電性が低下

する。これらの材料は、一般にスピンドルコート法や印刷法により膜を形成することが可能である。

これらの高分子にドープされる酸としては、塩酸、硫酸、硝酸等の無機酸、または酢酸、ギ酸、シュウ酸を用いることが可能である。

5 また、熱分解することにより高抵抗化する有機半導体をリーク層の材料として用いることが可能である。具体的には、TCNQ(7・7・8・8-テトラシアノキノジメタン)錯体等の有機半導体を用いることが可能である。この種の有機半導体は、高温にすると、熱分解し高抵抗化する。これらの材料は、蒸着法によって膜を形成することが可能である。蒸着で膜を形成した後に、前述のように、加熱処理を加えることにより、ピンホール
10 等の欠陥が減少し、ステップカバレッジを向上することが可能となる。

(変形例)

以下に、本発明による有機EL素子の実施例の変形例を示す。

上述の実施例では、基板上に陽極を形成する構造について示したが、本発明はこれに限定されるものではなく、基板上に陰極を形成する構造についても適用可能である。図7に例を示す。

図7の有機EL素子は、基板31上に陰極32を形成し、その上に順に積層された電子注入層35、発光層36、正孔輸送層37、及び正孔注入層38を有する有機機能層34を形成し、そして正孔注入層38上に陽極33を形成している。

図7の有機EL素子は電子注入層35が、通常の使用温度領域で電子を発光層36に注入する電子注入層として機能し、且つ過電流を抑制するリーク防止層として機能する。電子注入層35は、少なくとも製品の最高使用温度(最高動作温度又は最高保存温度)を超える高温域で比抵抗が上昇し、高抵抗化する材料から構成されている。従

って、電子注入層35は、欠陥に起因する電流集中によりジュール熱の発生により高抵抗化する。これにより、電流が抑制され、絶縁破壊等の素子の損傷を防ぐ。

また、図8は、本発明による有機EL素子の実施例の別の変形例を示す図である。図8の有機EL素子は、基板41上に陰極42を形成し、その上に順に積層された電子注入層45、発光層46、正孔輸送層47、及び、正孔注入層48を有する有機機能層44を形成し、そして正孔注入層48上に陽極43を形成している。

図8の有機EL素子は、電子注入層45が、通常の使用温度領域で電子を発光層46に注入する電子注入層として機能し、且つ、過電流を抑制するリーク防止層として機能する。また、正孔注入層48が通常の使用温度領域で電子を発光層46に注入する正孔注入層として機能し、且つ、過電流を抑制するリーク防止層として機能する。電子注入層45及び正孔注入層48は、少なくとも製品の最高使用温度(最高動作温度又は最高保存温度)を超える高温域で比抵抗が上昇し、高抵抗化する材料から構成されている。従って、電子注入層45及び正孔注入層48は、欠陥に起因する電流集中によりジュール熱の発生により高抵抗化する。これにより、電流が抑制され、絶縁破壊等の素子の損傷を防ぐ。このように、有機機能中に二つ以上のリーク防止層を設けるようにしてもよい。

以下に、本発明の実施例の作成方法について説明する。ただし、本発明は、以下の例によって何ら限定されるものではない。

(例1)

20 例1では、以下のような手順に基づき有機素子を作成した。

(1) 陽極の形成

ガラス基板上にITOを1500Åスパッタ法により成膜した。次にフォトレジストAZ611

2(東京応化工業製)をITO膜上にパターン形成した。この基板を塩化第2鉄水溶液と塩酸の混合液中に浸漬し、レジストに覆われていない部分のITOをエッチングした。その後、ガラス基板をアセトン中に浸漬させてレジストを除去し、所定のITO電極パターンを得た。

5 (2) リーク防止層の形成

(1)のガラス基板に、有機溶媒に溶解し酸をドープしたポリアニリン誘導体の塗布液をスピンドルコートした。基板の表示部分以外の端子部分に付着した塗布液を拭き取り除去した後、基盤をホットプレートにて加熱して溶媒を蒸発させ、450Åのポリアニリン膜(リーク防止層)を得た。

10 (3) 他の有機機能層及び陰極の形成

(2)のガラス基板上に、リーク防止層以外の有機機能層としてNPABPを250Å、Alq3を600Å蒸着法により形成した。更に陰極として、Al-Li合金を1000Å蒸着法により形成し、有機EL素子を完成させた。陽極と陰極の交差部により確定される有機EL素子の大きさは2mm×2mmであった。

15 (比較例1)

比較例1として、実施例1の(2)を行わず(つまり、リーク防止層の形成を行わず)、(3)でNPABPの膜厚を700Åとした以外は、実施例1と全く同様にして有機EL素子を完成させた。実施例1の有機EL素子と比較例1の有機EL素子は、トータル膜厚が同一であった。

20 (ポリアニリン誘導体膜の比抵抗)

ガラス基板上に実施例1の(2)と全く同様にしてポリアニリン膜を成膜し、サンプルを形成した。このサンプルをホットプレートにて5分間、様々な温度で加熱した。加熱した

サンプルについて、シート抵抗を2端子法で、膜厚を触針式膜厚計Dektakにてそれぞれ測定し、各測定結果から比抵抗を求めた。

図9は、上記ポリアニリン膜における加熱温度と比抵抗の関係を示すグラフである。ポリアニリン誘導体膜は、250～300°Cにかけて、抵抗値が100倍程度上昇した。これはドープした酸が熱により脱ドープし、急激に高抵抗化したものと考えられる。このポリアニリン膜は、250～300°Cという温度領域で急峻且つ大幅に高抵抗化が生じており、リーク防止層として好適であることがわかった。

(素子の逆特性)

例1及び比較例で作成した素子に、それぞれ逆の電圧(陽極にマイナス、陰極にプラス)を印加し、素子内を流れる電流を測定した。測定は、各々のサンプルにつき2回ずつ行った。図10に測定結果を示す。

例1の素子は、1回目の測定の3Vと5V付近で陽極と陰極のショートが原因と思われる電流の増大が見られるが、直ぐに正常な電流値に戻っている。これは、一時的に欠陥部分に電流が多く流れたが、リーク防止層の効果で電流集中が緩和されたものと思われる。2回目の測定では、電流の増大は見られず、電流値の小さい滑らかな特性が得られた。これは、1回目に電圧を印加した際に、主立った欠陥部分がリーク防止層により修復されたものと考えられる。

一方、比較例1の素子は、1回目及び2回目ともに陽極と陰極のショートが原因と思われる電流の増大があり、また欠陥が修復された様子も見られなかった。以上より、リーケ防止層を設けたことにより、電流集中による素子の破壊が防止されることがわかった。

(例2)

以下の手順で、有機EL表示パネルを作成した。

(1) 陽極の形成

ガラス基板上にITOを1500Åスパッタ法により成膜した。次にフォトレジストAZ611
2(東京応化工業製)をITO膜上にパターン形成した。この基板を塩化第2鉄水溶液と
5 塩酸の混合液中に浸漬し、レジストに覆われていない部分のITOをエッチングした。
その後、ガラス基板をアセトン中に浸漬させてレジストを除去し、256本のラインからな
るストライプ上電極パターンを得た。

(2) リーク防止層の形成

(1)のガラス基板に、有機溶媒に溶解し酸をドープしたポリアニリン誘導体の塗布液
10 をスピンドルコートした。基板の表示部分以外の端子部分に付着した塗布液を拭き取り除
去した後、基板をホットプレートにて加熱して溶媒を蒸発させ、450Åのポリアニリン膜
(リーク防止層)を得た。

(3) 他の有機機能層及び陰極の形成

(2)のガラス基板上に、リーク防止層以外の有機機能層としてNPABPを250Å、Al
15 q3を600Å蒸着法により形成した。更に陰極として、64本のストライプパターンからな
るマスクを用いて、Al-Li合金を1000Å蒸着法により形成した。陽極と陰極の交差
部により確定される1ドットの大きさは0.3mm×0.3mm、ドット数は256×64ドットで
あつた。

(4) 封止

20 乾燥窒素雰囲気下において、(3)の基板に、凹み部分に乾燥剤を固定した封止板
を接着剤で張り合わせ、パッシブ駆動有機ELパネルを作成した。

(比較例2)

比較例2として、例2の(2)を行わず(つまり、リーク防止層の形成を行わず)、(3)でNPABPの膜厚を700Åとした以外は、例1と全く同様にして256×64ドットの有機ELパネルを完成させた。例1の有機ELと比較例1の有機EL素子は、トータル膜厚が同一であった。

5 (高速連続駆動試験)

例2及び比較例2で作成したパネルを所定の駆動回路に接続し、85°Cの雰囲気かで500時間連続点灯した後、陰極と陽極がショートして不良となった。ドット数を調べた。以下に結果を示す。

| | | |
|---------------|--------|-------|
| •例2のパネル: | 不良ドット数 | 0ドット |
| 10 •比較例2のパネル: | 不良ドット数 | 16ドット |

従って、リーク防止層を有する実施例2のパネルは、リーク防止層を持たない比較例2のパネルよりも、ショートによる不良が少ないことが確認された。

以上、本発明に係る実施例の有機EL素子は、陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に挟持され、光を発する有機EL層とを備え、前記有機EL層は、温度上昇に伴い高抵抗化するリーク防止層を少なくとも有する。従って、有機機能層中の欠陥により生ずる過電流が生じても、リーク防止層は、過電流による発熱により高抵抗化し、電流を抑制するため、有機EL素子の欠陥に起因する素子破壊を未然に防ぐことが可能となる。

また、リーク防止層は、ステップカレッジを他の層と同等以上となるように構成したので、有機機能層の欠陥部をリーク防止層がカバーでき、本発明の効果を更に高めることが可能となる。

請求の範囲

1. 陽極と、陰極と、前記陽極と前記陰極との間に挟持され、光を発する有機EL層とを備え、

前記有機EL層は、温度上昇に伴い高抵抗化するリーク防止層を少なくとも有する有
5 機EL素子。

2. 前記リーク防止層は、正孔輸送性を有し、ホールを前記陽極側から前記陰極側に輸送する請求項1記載の有機EL素子。

3. 前記リーク防止層は、電子輸送性を有し、電子を前記陰極側から前記陽極側に輸送する請求項1又は2記載の有機EL素子。

10 4. 前記リーク防止層は、前記陽極に接するように配置された請求項1又は2記載の有機EL素子。

5. 前記リーク防止層は、前記陰極に接するように配置された請求項1又は3記載の有機EL素子。

6. 前記リーク防止層は、120°C以上の温度で高抵抗化する請求項1乃至5の何れか記載の有機EL素子。

7. 前記リーク防止層は、120~400°Cの温度で高抵抗化する請求項6記載の有機EL素子。

8. 前記リーク防止層は、200~300°Cの温度で高抵抗化する請求項7記載の有機EL素子。

20 9. 前記リーク防止層は、高抵抗化時に比抵抗が、高抵抗化前の抵抗値の10倍以上大きくなる請求項1乃至8の何れか記載の有機EL素子。

10. 前記リーク防止層は、高抵抗化時に比抵抗が、 $10^{11} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上となる請求項

1乃至8の何れか記載の有機EL素子。

11. 前記リーグ防止層は、酸がドープされた導電性高分子を素材としている請求

項1乃至10の何れか記載の有機EL素子。

12. 前記リーグ防止層は、湿式成膜法又は気相成膜法により形成された請求項1乃

5 至11の何れか記載の有機EL素子。

Fig. 1

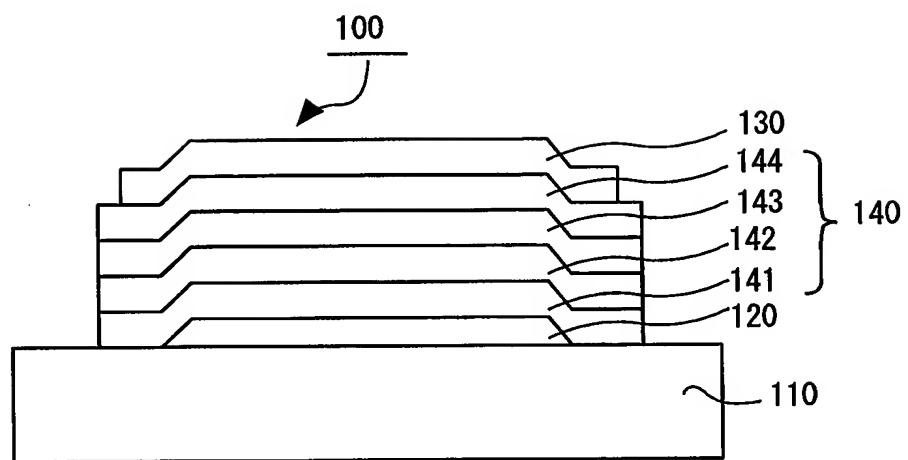


Fig. 2 A

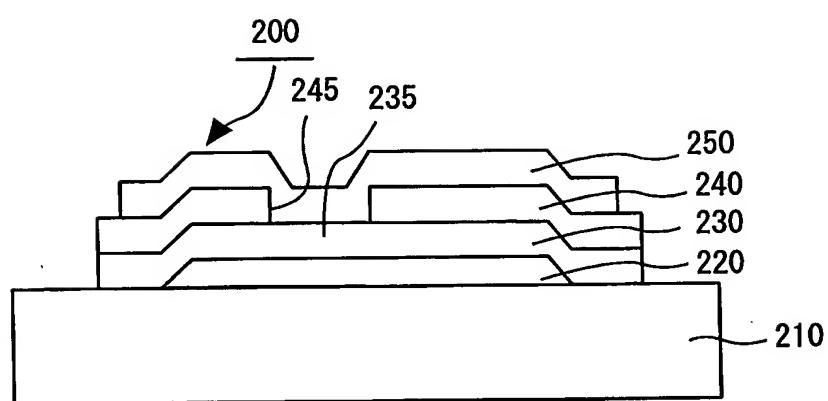
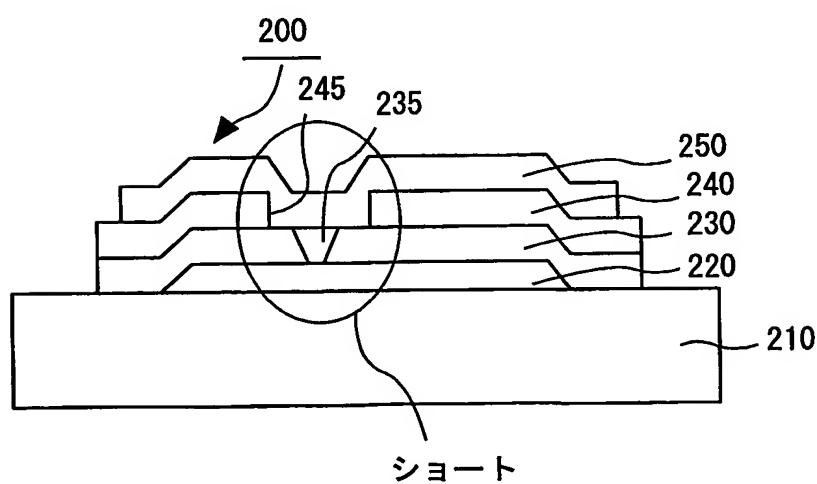


Fig. 2 B



3/8

Fig. 3

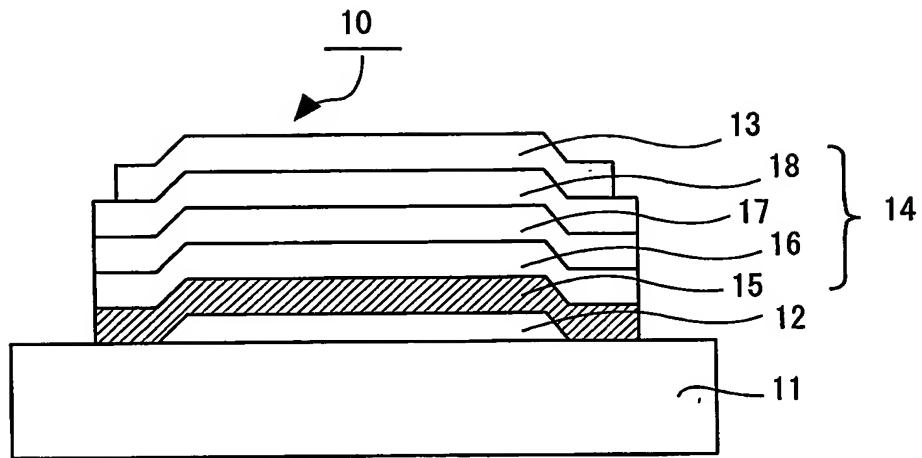


Fig. 4 A

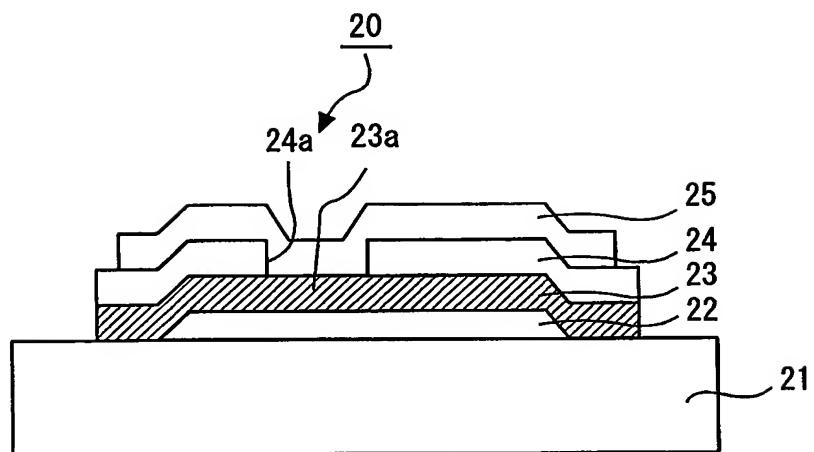


Fig. 4 B

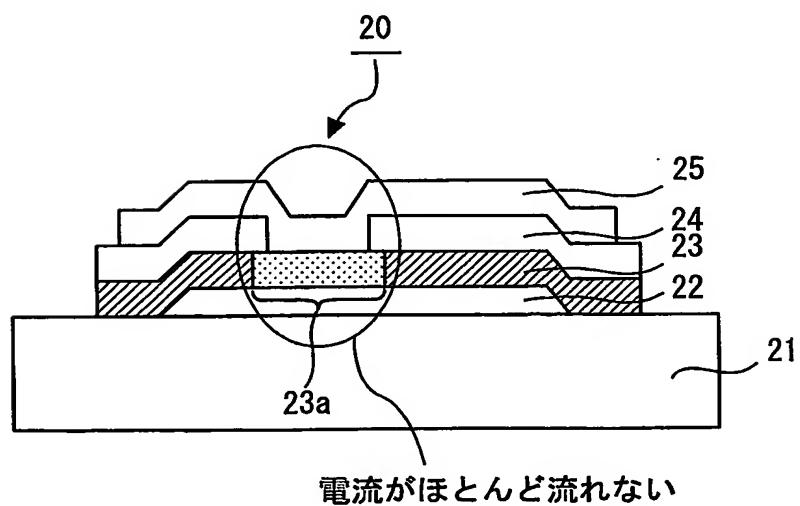


Fig. 5 A

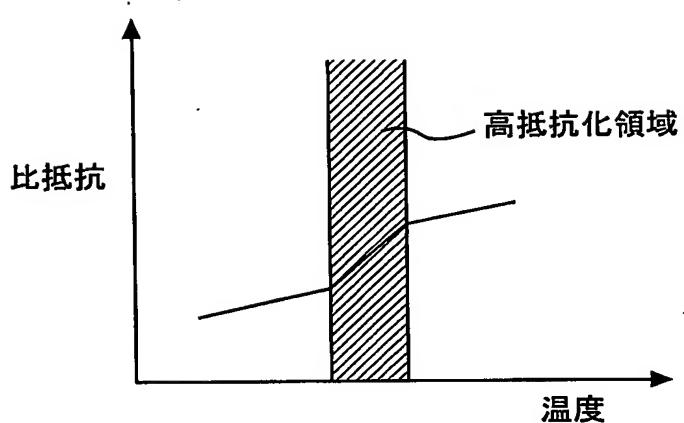


Fig. 5 B

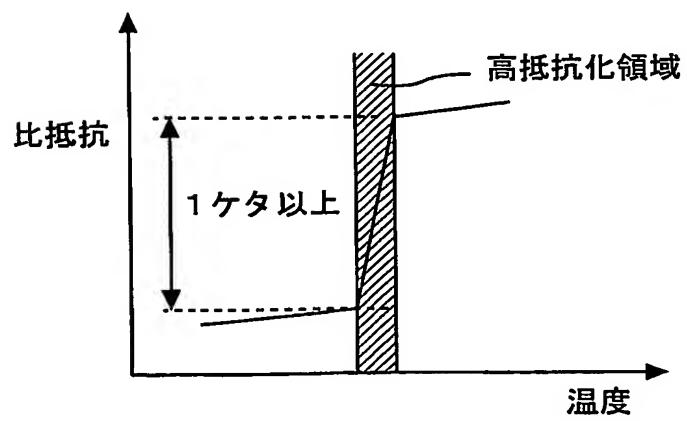


Fig. 6 A

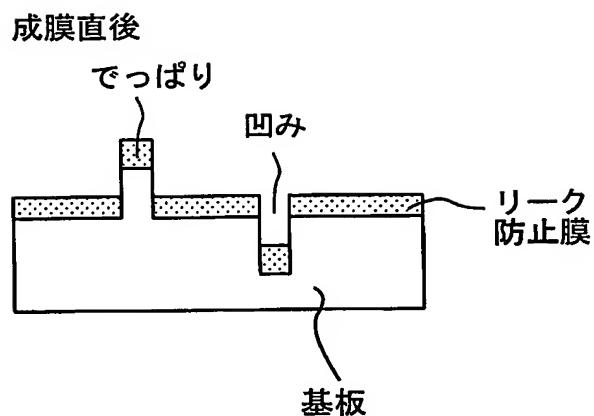


Fig. 6 B

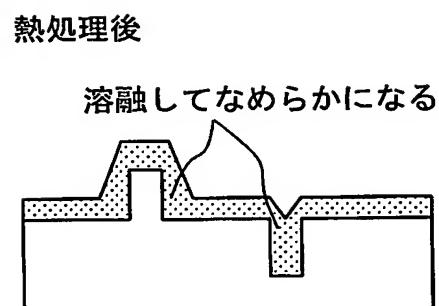
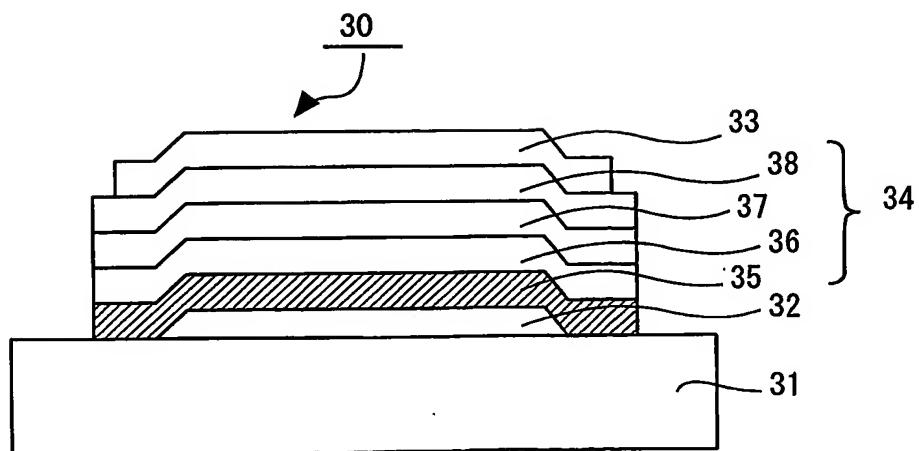


Fig. 7



7/8

Fig. 8

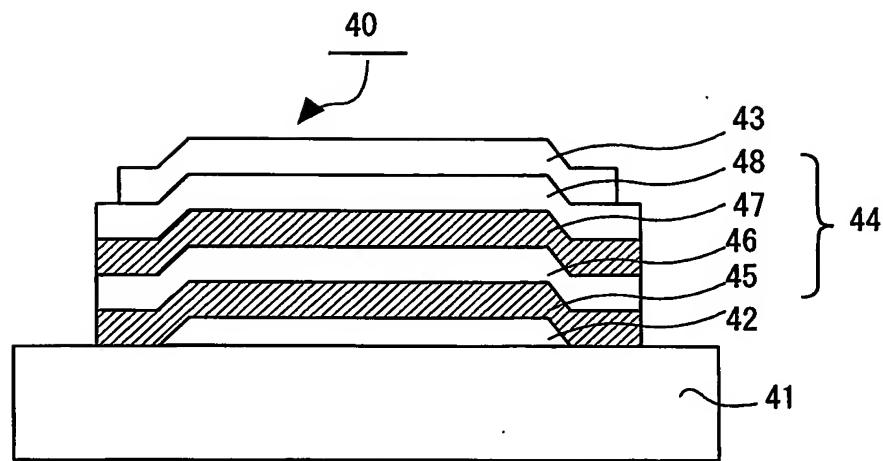


Fig. 9

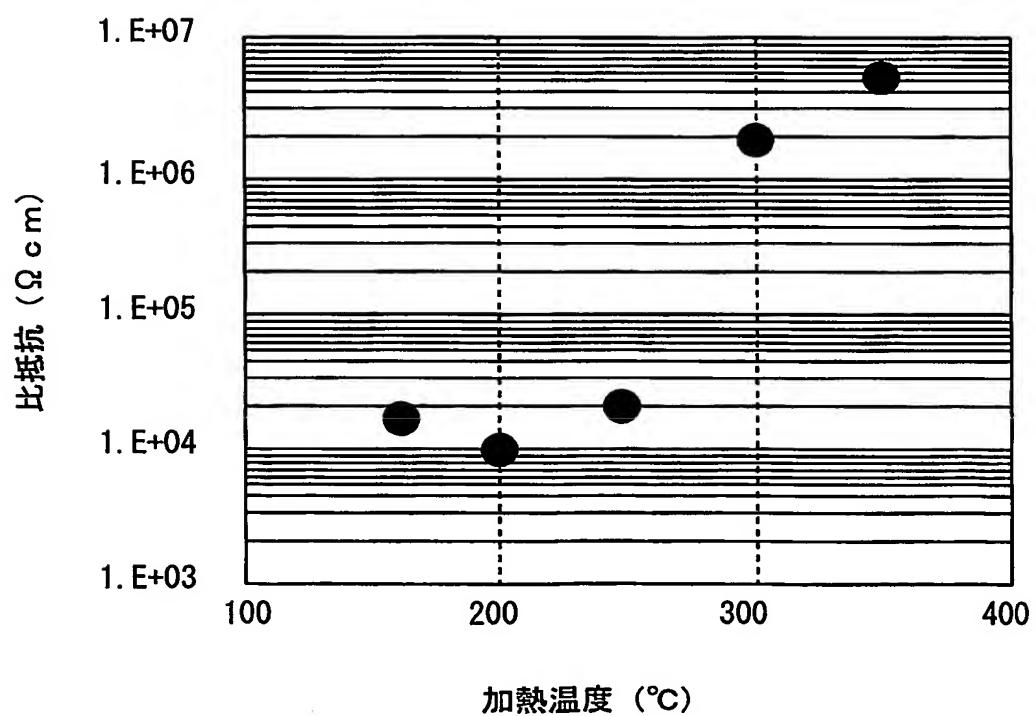


Fig. 10

